

PCT

特許性に関する国際予備報告 (特許協力条約第二章)

(法第12条、法施行規則第56条)

[PCT 36条及びPCT規則70]

REC'D 23 DEC 2004

WIPO

PCT

|                              |                                    |                           |
|------------------------------|------------------------------------|---------------------------|
| 出願人又は代理人<br>の書類記号<br>FWA3-28 | 今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。 |                           |
| 国際出願番号<br>PCT/JPO3/13721     | 国際出願日<br>(日.月.年) 27.10.2003        | 優先日<br>(日.月.年) 25.10.2002 |
| 国際特許分類 (IPC)                 | Int.Cl <sup>7</sup>                | B43K 7/08,5/02            |
| 出願人 (氏名又は名称)<br>三菱鉛筆株式会社     |                                    |                           |

1. この報告書は、PCT 35条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。  
法施行規則第57条 (PCT 36条) の規定に従い送付する。

2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。

3. この報告には次の附属物件も添付されている。

a ☒ 附属書類は全部で 11 ページである。

☒ 補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面の用紙 (PCT規則70.16及び実施細則第607号参照)

☐ 第I欄4. 及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙

b ☐ 電子媒体は全部で (電子媒体の種類、数を示す)。  
配列表に関する補充欄に示すように、コンピュータ読み取り可能な形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。 (実施細則第802号参照)

4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

- ☒ 第I欄 国際予備審査報告の基礎
- ☐ 第II欄 優先権
- ☐ 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- ☐ 第IV欄 発明の単一性の欠如
- ☒ 第V欄 PCT 35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- ☐ 第VI欄 ある種の引用文献
- ☐ 第VII欄 国際出願の不備
- ☐ 第VIII欄 国際出願に対する意見

|  |                                   |    |      |
|--|-----------------------------------|----|------|
| 国際予備審査の請求書を受理した日<br>11.03.2004                                   | 国際予備審査報告を作成した日<br>06.12.2004      |    |      |
| 名称及びあて先<br>日本国特許庁 (IPEA/JP)<br>郵便番号100-8915<br>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 | 特許庁審査官 (権限のある職員)                  | 2T | 9231 |
|  | 砂川 充<br>電話番号 03-3581-1101 内線 3266 |    |      |

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (2004年1月)

## 第 I 欄 報告の基礎

1. この国際予備審査報告は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎とした。

☐ この報告は、\_\_\_\_\_ 語による翻訳文を基礎とした。

それは、次の目的で提出された翻訳文の言語である。

- ☐ PCT規則12.3及び23.1(b)にいう国際調査  
☐ PCT規則12.4にいう国際公開  
☐ PCT規則55.2又は55.3にいう国際予備審査

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 1-4,7-9,13,15,17-20,22-25 ページ、出願時に提出されたもの

第 5,6,11,10,11,12,14,14/1,16,21 ページ\*、18.06.2004

付けで国際予備審査機関が受理したもの

第 \_\_\_\_\_ ページ\*、 \_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 2 項、出願時に提出されたもの

第 \_\_\_\_\_ 項\*、PCT19条の規定に基づき補正されたもの

第 1 項\*、18.06.2004

付けで国際予備審査機関が受理したもの

第 \_\_\_\_\_ 項\*、 \_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☐ 図面

第 \_\_\_\_\_ ページ/図、出願時に提出されたもの

第 \_\_\_\_\_ ページ/図\*、 \_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

第 \_\_\_\_\_ ページ/図\*、 \_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☒ 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ

☒ 請求の範囲 第 3 項

☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図

☐ 配列表 (具体的に記載すること)

☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること)

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ

☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項

☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図

☐ 配列表 (具体的に記載すること)

☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること)

\* 4. に該当する場合、その用紙に "superseded" と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

|                |           |        |
|----------------|-----------|--------|
| 新規性 (N)        | 請求の範囲 1-2 | 有<br>無 |
|                | 請求の範囲     |        |
| 進歩性 (IS)       | 請求の範囲 1-2 | 有<br>無 |
|                | 請求の範囲     |        |
| 産業上の利用可能性 (IA) | 請求の範囲 1-2 | 有<br>無 |
|                | 請求の範囲     |        |

## 2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

文献1 JP 2001-353993 A (三菱鉛筆株式会社) 2001.12.25 全文

文献2 JP 8-142570 A (株式会社トンボ鉛筆) 1996.06.04 全文、図1

文献1には、次の記載がある。

【請求項1】「温度25℃、角周波数0.1～650rad/secの全周波数領域における $\tan \delta$ の値が0.1～2であることを特徴とする水性ボールペン用インキ追従体。」

【請求項5】「温度25℃、剪断速度1～400sec<sup>-1</sup>における粘度が5Pa・sec以下の非水溶性有機溶剤よりなる基油と、増粘剤とを含有してなるものである請求項1ないし3のいずれかの項に記載のインキ追従体。」

【請求項6】「増粘剤が、……、オレフィン結晶－エチレンブチレン－オレフィン結晶のブロックコポリマー、……よりなる群から選ばれる1種または2種以上であることを特徴とする請求項5記載のインキ追従体。」

【0023】「オレフィン結晶－エチレンブチレン－オレフィン結晶のブロックコポリマーの好ましい市販品としては、例えば、DYNARON6200P (JSR株式会社製；商品名) 等が挙げられる。」

第10欄第22-25行「インキ収容管の内径が太め（例えば3.5mmを越えるもの）の場合は、比較的 $\tan \delta$ の低いインキ追従体（ $\tan \delta$ が0.1～1程度）を使用した方が好ましく」

文献2には、増粘剤としてポリエステル系熱可塑性エラストマーを含有する水性ボールペン用インキ蒸発及び流出防止体組成物、が記載されている。

## 〔請求の範囲1-2〕

請求の範囲1-2に記載された発明は、新規性及び進歩性を有する。

特に、請求の範囲1-2に記載された発明の次の技術事項が、文献1-2のいずれにも開示されていない。

インキ追従体のJIS K 2220-5.7-1993に準拠した離油度試験(60℃、24h)の値が0.2%～15%である点。

しかも、この技術事項は、当業者にとって前記文献1-2からみて自明である、ということもできない。

となる。

3) 一方、弾性優位のインキ追従体は、粘性優位のものと比べるとインキ収容管内の付着残留がないものの、粘弾性を付与する増粘剤の種類や配合によっては十分な追従性能を発揮しない場合が多い。

5       しかしながら、弾性優位のインキ追従体で、僅かに基油成分が析出しているものは、インキ収容管－インキ追従体間の摩擦抵抗を下げるため、インキ追従体の配合によらず、より一層追従性能が高まるものとなる。特に、流量が多い比較的低粘度のインキや太字タイプの水性ボールペン、または太字仕様でなくても2倍速以上の筆記において、描線がカスレることがなく、追従応答性の効果が非常に  
10       高いことが確認されている。また、本来、弾性優位のインキ追従体の特徴であるインキの掻き取り性、耐落下衝撃性も兼ね備えているため、品質バランスの優れたインキ追従体を得ることができることとなる。

従って、インキ追従体を弾性優位に調整することで、インキ消費量の多い（太字などの）仕様などでも、インキ追従難やインキ追従体の一部がインキ収容管  
15       壁に付着残留することを軽減でき、筆記流量も安定することとなり、また、粘弾性付与剤に非スチレン系熱可塑性エラストマー、例えば、塩化ビニル系熱可塑性エラストマー、オレフィン系熱可塑性エラストマー、ポリアミド系熱可塑性エラストマー、ポリエステル系熱可塑性エラストマー、ポリウレタン系熱可塑性エラストマーなどを使用することで、追従性などの経時的な変動は改善できることを  
20       知見することにより、本発明を完成するに至ったのである。

よって、本発明は、次の（１）及び（２）の各構成にすることにより、上記目的のインキ追従体を得られることとなる。

（１） 不揮発性若しくは難揮発性有機溶剤と、該有機溶剤に可溶若しくは膨潤する非スチレン系熱可塑性エラストマーとを含有し、弾性応答が優位の粘弾性を示すインキ追従体からなり、かつ、該インキ追従体の J I S   K   2 2 2 0 - 5  
25       . 7 - 1 9 9 3 に準拠した離油度試験（60℃、24h）の値が0.2%～15

%であることを特徴とするインキ追従体。

(2) 前記非スチレン系熱可塑性エラストマーが、塩化ビニル系熱可塑性エラストマー、オレフィン系熱可塑性エラストマー、ポリアミド系熱可塑性エラストマー、ポリエステル系熱可塑性エラストマー、ポリウレタン系熱可塑性エラストマーから選ばれる少なくとも1種である上記(1)記載のインキ追従体。

発明を実施するための最良の形態

以下に、本発明の実施の形態を詳しく説明する。

本発明のインキ追従体は、不揮発性若しくは難揮発性有機溶剤と、該有機溶剤に可溶若しくは膨潤する非スチレン系熱可塑性エラストマーとを含有し、弾性応答が優位の粘弾性を示すインキ追従体からなり、かつ、該インキ追従体のJIS K 2220-5. 7-1993に準拠した離油度試験(60℃、24h)の値が0.2%~15%であることを特徴とするものである。

本発明におけるインキ追従体は、上述のごとく、(a)不揮発性若しくは難揮発性有機溶剤と、該有機溶剤に可溶若しくは膨潤する非スチレン系熱可塑性エラストマーとを含有すること、(b)弾性応答が優位の粘弾性を示すこと、(c)該インキ追従体のJIS K 2220-5. 7-1993に準拠した離油度試験(60℃、24h)の値が0.2%~15%であることが必要であり、以下に上記(a)~(c)の構成ごとに詳述する。

本発明のインキ追従体に使用する不揮発性若しくは難揮発性有機溶剤は、インキ追従体の基油として用いるものであり、例えば、鉱物油、ポリブテン、流動パラフィンなどを用いることができる。

用いることができる具体的なポリブテンとしては、例えば、市販品のニッサンポリブテン200N、ポリブテン30N(以上、日本油脂社製)、ポリブテンHV-15(日本石油化学社製)、35R(出光興産社製)などが挙げられる。

また、用いることができる具体的な鉱物油としては、例えば、市販品のダイア

ナプロセスオイルNS-100、PW-32、PW-90、NR-68、AH-58（出光興産社製）などが挙げられる。

これら不揮発性若しくは難揮発性有機溶剤は、1種または2種以上を組合わせ

ールの種類、量によって多様なポリマーができ、カプロラクトン型、アジピン酸型、ポリテトラメチレングリコール型〔PTMG型（又はエーテル型）〕などを用いることができる。例えば、市販品のエステンー58133、同ー58440、同ー58277、同ー58315、同ー5715、同ー58202、同ー54600、同ー54630（協和発酵工業株式会社製）、クラミロンUー1180、同ー1190、同ー1195、同ー3180、同ー3190、同ー3195、同ー6170、同ー6180、同ー6190、同ー9180、同ー9190、同ー9195、同ー2780、同ー2790、同ー2795、同ー6780、同ー6795（株式会社クラレ製）、レザミンPー1045、同ー1078、同ー1098、同ー7045、同ー7070、同ー2045、同ー2060、同ー4060、同ー4090、同ー4200、同ー4585、同ー4590、同ー8765、同ー880、同ー890（大日精化工業株式会社製）などが挙げられる。

これら粘弾性付与剤となる非スチレン系熱可塑性エラストマーは、1種または2種以上を組合わせて使用することができ、その使用量は、インキ追従体の弾性応答が優位の粘弾性を示す量であれば良く、インキ追従体全量に対して、0.2～30%、好ましくは、0.5～15%、更に好ましくは、0.5～10%とすることが望ましい。

本発明では、上記不揮発性若しくは難揮発性有機溶剤と、該有機溶剤に可溶若しくは膨潤する非スチレン系熱可塑性エラストマーとを含有した上で、(b)弾性応答が優位の粘弾性を示すことが必要である。通常、粘弾性の強さの指標としては、 $\tan \delta$ を用いることができる。ここで、 $\tan \delta$ ＝損失弾性率／貯蔵弾性率を意味する値であり、この値が大きいこと（ $\tan \delta > 1$ ）は、流動性が高いこと（あるいは粘性優位）であり、小さいこと（ $\tan \delta < 1$ ）は、固体状（あるいは弾性優位）であることを示す。

従って、本発明のインキ追従体では、弾性応答が優位の粘弾性を示すためには、 $\tan \delta$ の値が1～63rad/secの全周波数領域において、0.1～2

． 0、好ましくは、0.3～1.0、更に好ましくは、0.5～1.0とすることが望ましい。また、各周波数で測定した  $\tan \delta$  値の平均値は、1.0以下とすることが好ましい。

5 本発明において、上記全ての周波数領域で、 $\tan \delta$  の値が2.0を越えて上回ると、インキ消費に伴うインキ追従体のインキ収容管内での追従応答性が劣り、また、ペン体に衝撃を加えた際に、インキ追従体が飛散しやすくなる等の問題が発生してしまうこととなる。逆に、上記全ての周波数領域で、 $\tan \delta$  の値が0.1未満であると、インキ追従体の弾性が強くなりすぎるため、インキ収容管への充填が困難となり、実用性がなくなることとなる。

10 また、各周波数で測定した  $\tan \delta$  値の平均値を1.0以下とすることにより、更に良好な弾性応答が優位の粘弾性を示すこととなる。

本発明では、上記(a)不揮発性若しくは難揮発性有機溶剤と、該有機溶剤に可溶若しくは膨潤する非スチレン系熱可塑性エラストマーとを含有し、かつ、(b)弾性応答が優位の粘弾性を示すと共に、更に、この弾性優位のインキ追従体  
15 で、僅かに基油成分が析出している構成となるものである。

本発明において、更に、僅かに基油成分が析出しているインキ追従体とすることにより、インキ収容管－インキ追従体間の摩擦抵抗を更に下げため、より一層追従性能が高まるものとなり、特に、流量が多い比較的低粘度のインキや太字タイプの水性ボールペン、または太字仕様でなくても2倍速以上の筆記において、描線が更にカスレることがなく、追従応答性の効果が非常に高くすることができ  
20 きものとなる。更に、本来、弾性優位のインキ追従体の特徴であるインキの掻き取り性、耐落下衝撃性も兼ね備えているため、品質バランスの更に優れたインキ追従体を得ることができることとなる。

この基油成分の析出性は、離油度試験、具体的には、JIS K 2220-  
25 5.7-1993に準拠した離油度試験(60℃、24h)を行うことにより比較することができる。本発明において、僅かに基油成分が析出している構成とす



るためには、上記離油度試験の値を、0.2%～15%の範囲とすることが必要であり、好ましくは、1.0～10%とすることが望ましい。

なお、JIS K 2220-5.7-1993に規定される離油度試験方法は、JIS規格で定められた金属製の金網円錐ろ過器に測定試料を満たし、100℃の環境下で24h放置させ、金網円錐ろ過器から析出した油量を測定するものである。

本発明におけるインキ追従体も全般的に油分離性（離油度）は、上記規定の方法を採用することが可能となるものであるが、下記理由により測定条件を一部変更した方が好ましいものとなる。

すなわち、弾性を付与できる粘弾性調整剤の大半は、熱可塑性エラストマーなどのポリマーであり、これを用いてインキ追従体を調整すると、100℃前後で流動性を呈し、大幅に粘度低下が発現するものが多い。そのため、インキ追従体の離油度を100℃下で放置すると、ボールペンとしての性能が高いインキ追従体までも、前述のとおり大幅な低粘化が発現し、油成分以外の成分までもが金網円錐ろ過器外へ流出してしまうため、測定自体の信頼性が大きく低下してしまうこととなる。従って、実際のボールペン使用環境を考慮しても100℃でペン体を放置することはほとんどないため、油の析出性を100℃で測定することは現実的でないものとなる。

一方、離油度の測定条件を60℃-24hに設定すると、弾性優位のインキ追従体に関しては、油分離測定値とペン体性能に大きな相関が認められた。この温度条件で、特定範囲内の油分離性を発現するものに関しては、インキ掻き取り性、耐落下衝撃性が共に良好であることが確認された。ペン体の経時促進テストにおいても、50～60℃保存下での評価が採用されることが多いため、経時的なペン性能を評価するという観点からも60℃の測定が好ましいものとなる。

従って、本発明の離油度試験は、JIS K 2220-5.7-1993に

ペン性能を更に高めている。基油成分の析出の度合い（油分離度）をコントロールするには、以下の調整方法1）～6）を採用することなどにより調整することができる。これらの調製方法1）～6）は、各単独、または、適宜、2種以上組み合わせることも可能である。

5 油分離度を高めるためには、1）基油をやや過剰に配合し、増粘剤の濃度を低めに調整する、2）ポリマー系増粘剤を使用した場合は、できるだけ低温での加熱撹拌を行う、3）ロールミル、ニーダーなどの撹拌、混練の能力を落とし、増粘剤の分散を若干不均一化させる、4）製造したインキ追従体を比較的高温（30～60℃が好ましい）に数日間放置させる、などの各方法が挙げられる。

10 また、油分離度を低めるためには、5）増粘剤の配合量を高め、増粘構造を強化させ、基油の保持力を高める、6）ロールミル、ニーダーなどの撹拌、混練能力を上げ、増粘剤の分散を均一化する、などの各方法が挙げられる。

本発明のインキ追従体は、水性ボールペン、油性ボールペン等の筆記具用インキ収容管内の尾端部に具備することにより、使用に供されるものとなる。

15 このように構成される本発明のインキ追従体では、不揮発性若しくは難揮発性有機溶剤と、該有機溶剤に可溶若しくは膨潤する非スチレン系熱可塑性エラストマーとを含有し、弾性応答が優位の粘弾性を示すインキ追従体からなり、かつ、該インキ追従体のJIS K 2220-5. 7-1993に準拠した離油度試験（60℃、24h）の値を0.2%～15%とすることにより、ペン体仕様や、  
20 筆記流量、筆記速度によらず安定した追従性を有し、筆記途中でのインキ追従体不足で起因するインキの逆流や、ペン体に加えられた衝撃によってもインキ追従体が飛散せず、また、高温下でのペン体保管においてもインキ収容管からの流出が発生せず、且つ安定した筆記流量が得られるインキ追従体を提供することを目的とする。また、当然のこととして、インキと外気を遮断してインキの揮発を  
25 防止すること（揮発防止性）、上向き筆記時にインキの漏出がないものとなる。

日本国特許庁 18.6.2004

### 実施例

次に、実施例及び比較例によって本発明を更に具体的に説明するが、本発明は

pH調整剤：トリエタノールアミン 1.0重量%  
防腐剤：1, 2-ベンズイソチアゾリン3-オン 0.1重量%  
防錆剤：ベンゾトリアゾール 0.1重量%  
イオン交換水 残 部

5 以上の配合物を攪拌後ろ過し、水性ボールペン用黒インキを得た。

〔インキ3の調製〕

顔料：フタロシアニンブルー 1.5重量%

〔Chromofine Blue 4965, 大日精化工業社製〕

顔料：酸化チタン 20.0重量%

10 〔TITONE R-11P, 堺化学工業社製〕

分散剤：スチレンマレイン酸樹脂アンモニウム塩 2.5重量%

液体媒体：エチレングリコール 5.0重量%

粘度調整剤：キサンタンガム〔KELZAN HP〕 0.2重量%  
(三晶社製)

15 界面活性剤：カリセッケン 0.5重量%

pH調整剤：アミノメチルプロパノール 0.3重量%

防腐剤：ナトリウムオマジン 0.1重量%

防錆剤：サポニン 0.1重量%

イオン交換水： 残 部

20 以上の配合物を攪拌後ろ過し、水性ボールペン用青インキを得た。

各実施例及び比較例に用いたインキ追従体は、下記表1及び表2に示す組成、及び下記A～Dの調整方法で調製した。

〔インキ追従体調整方法A～D〕

(インキ追従体調整方法：A法)

25 基油と増粘剤（及び添加剤）を調合し、150℃～180℃でミキサーにて高速で約120分間攪拌し、室温まで冷却後、ロール処理を1回行い、インキ追従

められる。

〔(6) ペン体加温経時品のインキ流出安定性〕

各ペン体を50℃、湿度65%の条件でペン先(キャップ側)を横向きにして一ヶ月間放置し、取り出し後、各ペン体をISO規格に準拠した筆記用紙に、筆記試験機にて下記条件で終筆まで「らせん筆記」し、100mごとの筆記流量の推移と描線状態を初期状態(評価④)との比較で評価した。

評価基準:

○: インキの流出性、濃度ムラは、初期状態とほとんど変化なし。

△: 初期状態に比べて、インキの流出性、濃度ムラが少し認められ、少し筆記性能が低下している。

×: 初期状態に比べて、インキの流出性、濃度ムラに大きな変化があり、明らかに筆記性能が低下している。

## 請 求 の 範 囲

- 5 1. (補正後) 不揮発性若しくは難揮発性有機溶剤と、該有機溶剤に可溶若しくは膨潤する非スチレン系熱可塑性エラストマーとを含有し、弾性応答が優位の粘弾性を示すインキ追従体からなり、かつ、該インキ追従体の J I S K 2 2 2 0 - 5 . 7 - 1 9 9 3 に準拠した離油度試験 (6 0 ℃、2 4 h) の値が 0 . 2 % ~ 1 5 % であることを特徴とするインキ追従体。
- 10 2. 前記非スチレン系熱可塑性エラストマーが、塩化ビニル系熱可塑性エラストマー、オレフィン系熱可塑性エラストマー、ポリアミド系熱可塑性エラストマー、ポリエステル系熱可塑性エラストマー、ポリウレタン系熱可塑性エラストマーから選ばれる少なくとも 1 種である請求の範囲第 1 項記載のインキ追従体。
3. (削除)